

令和元年度国内モニタリングデータの取りまとめ

1 調査目的

日本国内における酸性雨モニタリングデータを集約する国内センターとして、EANET 測定局を含む国設酸性雨測定所及び大気環境測定所、土壌・植生、陸水、集水域調査地点で得られた測定データ（令和元年度）を収集し、取りまとめを行った後、解析・評価を実施した。

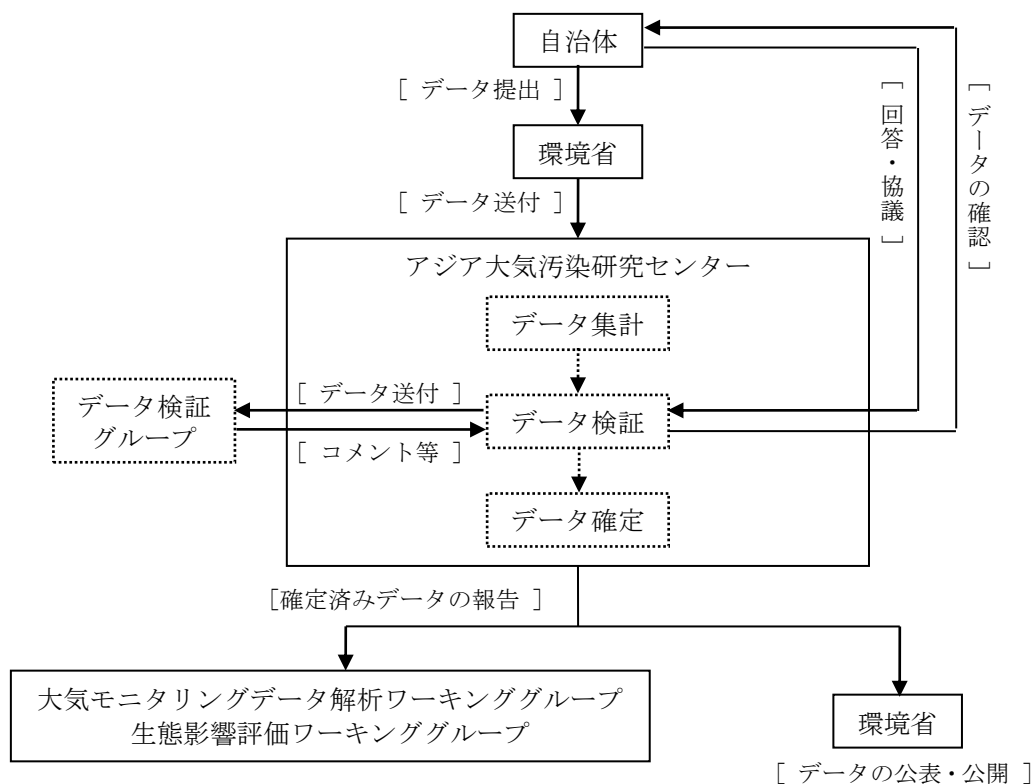
2 調査方法

2.1 データ確定・公開までの手続き

自治体から環境省に提出されたモニタリングデータは、(EANET 局以外のものも含めて) アジア大気汚染研究センターにおいて集計され、専門家から成るデータ検証グループのチェックを含む検証作業の後、同センターにおいて確定された。

確定データは、大気モニタリングデータ解析ワーキンググループ、生態影響評価ワーキンググループ、環境省に報告され、環境省から公表・公開される。

なお、公開されたデータはホームページ及びデータ提供請求により自由に入手と利用が可能となる。公開されたデータを利用して発表等を行う者には、出典を明らかにすることを求めている。



[参考] 令和2年度データ検証グループ（敬称略）

- ① 湿性：岩崎 綾、木戸 瑞佳、友寄 喜貴、原 宏、皆巳 幸也、山口 高志
- ② 乾性：藍川 昌秀、奥田 知明、櫻井 達也、松田 和秀、森野 悠
- ③ 土壌・植生：戸田 浩人、久米 篤、小林 政広
- ④ 陸水：越川 昌美、川上 智規、山田 俊郎

- ⑤ 集水域：高橋 正通、山下 尚之、山田 俊郎

2.2 令和元年度国内モニタリング

令和元年度国内モニタリングの調査内容は以下のとおりである。

種 類	モニタリング地点
湿性沈着	19 か所 (15 都道県市)
乾性沈着	20 か所 (15 都道県市)
土壌・植生	15 地点 (13 道府県)
陸水	6 湖沼 (6 県市)
集水域	1 地点 (1 県)

3 調査結果

3.1 令和元年度国内酸性雨測定局湿性沈着モニタリングデータについて

(1) データ検証作業の手順について

① 自治体担当者における測定結果の確定及び報告について

自治体担当者は「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）」及び令和元年度の管理運営委託業務実施要領に基づいて、以下の手順で測定結果の確定及び報告を行った。

- (ア) 試料回収時に湿性沈着捕集現場記録表（様式9）に試料識別番号、捕集量、雨量計記録値、特記事項等を記録する。
- (イ) 試料識別番号毎に（または捕集期間毎に）、全項目の分析を実施する。
- (ウ) イオンバランス（ R_1 ）、電気伝導率の計算値と測定値の比較（ R_2 ）のチェックを行った結果、必要とされる基準から外れていれば、再分析を行う。 R_1 、 R_2 が改善されれば、再分析結果を採用し、再分析においても改善がみられなければ、1回目の分析値を採用する。
- (エ) 試料の分析データ以外の精度管理に関する以下の情報を記録する。
- a) 検出下限値及び定量下限値の測定結果（様式12）
 - b) 湿性沈着分析コントロールチャート（様式13）
 - c) 現地での空試験試料分析結果（様式14）
 - d) 湿性沈着繰り返し測定結果（様式15）
- (オ) 試料の分析データを湿性沈着分析結果（様式10）に以下の手順で入力する。
- a) 採取記録と分析データから、湿性沈着分析結果（様式10）の記入要項に従って、各項目を入力する。
 - b) 検出下限値及び定量下限値の測定結果をもとに、検出下限値及び定量下限値未満の分析値にフラッグを入力する。その他のフラッグについても該当するものがあれば入力する。
 - c) 備考欄に特記事項を入力する。

② アジア大気汚染研究センターのデータ検証作業

アジア大気汚染研究センターはデータ検証を以下の手順で実施した。

- (ア) データの欠落：捕集期間、試料量、降水量、分析値及びフラッグの欠落が確認され

た場合、自治体担当者に問い合わせ、データ欠落の穴埋めを行う。

- (イ) 降水量のチェック：次の3つのデータを捕集期間ごとに比較する。①標準雨量計、②試料量からの計算値（相当雨量）、③直近のアメダス局
- (ウ) 試料捕集期間の特定：上記（イ）の比較から、試料捕集期間に間違いがないかどうかをチェックし、疑いがある場合は自治体担当者に確認し、修正するかどうか決定する。
- (エ) トラブル等の特記事項に関する処理：停電、装置故障等のトラブル、その他特記事項について、詳しい時刻、状況、考えられる原因を自治体担当者に問い合わせ、必要があれば捕集期間あるいは降水量等を修正し、また、分析値がある試料について有効か無効かの判断をする（バルク等）。
- (オ) 降水量の確定：上記（イ）の比較から、捕集期間毎に最も適切と考えられる降水量を選択し（原則的な優先順位は上記（イ）の順番）、フォーマットの降水量に入力する。
- (カ) R_1 、 R_2 のチェック： R_1 、 R_2 をチェックし、極端に外れている試料があれば自治体担当者に問い合わせる。
- (キ) 検出下限値及び定量下限値未満の分析値：報告されている検出下限及び定量下限の測定結果から、検出下限値及び定量下限値未満の分析値にフラグが入力されているかどうかチェックし、入力されていない場合は入力する。
- (ク) その他、上記以外に報告フォーマットに入力されているあらゆるデータについて、疑問が生じたときは、自治体担当者に問い合わせ、データを修正する。
- (ケ) 自治体担当者に問い合わせた結果、原因が不明だった場合は、データは修正せず、試料は有効とする。
- (コ) 原則として下記の入力基準に従って、入力されている分析値が持っている有効桁数が間違っていれば、正しい有効桁数に修正する。

参考「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）」（平成13年3月刊行）引用

測定項目	単位	入力桁数
各成分濃度	$\mu\text{mol L}^{-1}$	小数点以下1桁（1000 $\mu\text{mol L}^{-1}$ 以上は整数のみ）
電気伝導率（EC）	mS m^{-1}	小数点以下2桁
pH		小数点以下2桁
試料量	g	小数点以下1桁（1000 g以上は整数のみ）
降水量	mm	小数点以下1桁

- (サ) 報告フォーマットに入力されている生データを確定し、月間、年間の濃度平均値、最大・最小値、湿性沈着量、データの完全度等を集計する。なお、統計処理作業において月間、年間の濃度平均値、最大・最小値は、有効数字3桁、小数点以下1桁、沈着量は、有効数字3桁、小数点以下2桁とした。

※補足：主なデータ修正点

- a) 雨量計、相当雨量及び近傍のアメダス局のデータを比較し、データの入れ違い等の誤りがないかを確認した。また、雨量計と相当雨量の値が大きく異なる場合、機器故障等のトラブルが発生していたか照会を行い、必要な修正を行った。
- b) オーバーフローをおこした試料について、降水量を試料量から再計算するとともに、試料損失の有無を確認し、必要に応じて自治体への照会及びデータ修正を行った。

③ 国内データ検証グループによる検証作業

アジア大気汚染研究センターによる検証作業が終了した後、国内データ検証グループによるデータ検証を行った。アジア大気汚染研究センターでは、これらの指摘をもとに再度自治体への照会、修正等の作業を行った。

(2) データの集計方法について

① 有効データの判定

(ア) 降水量

原則として、①標準雨量計、②試料量からの計算値の優先順位に従って降水量のデータを採用した。停電等でこれらのデータがいずれも利用できないときに限り、直近のアメダスデータを採用し、アメダスデータも利用できない場合を除き、対象とするすべての期間で降水量のデータを確定させた。

(イ) 分析データ

原則として、湿性沈着試料が存在し分析値があればそのデータを有効とし、以後の計算に用いた。その際、未測定イオン等を考慮した $R_1 \cdot R_2$ による検定、及び統計的検定は実施しなかった。但し、以下の場合については、分析値を無効として計算から除外した。

- a) バルク捕集された場合
- b) 試料が汚染された場合
- c) 試料の日付が特定されなかった場合
- d) 捕集した試料量から計算した降水量(相当雨量)が確定された降水量に対して10%未満であった場合 (捕集効率が10%未満)
- e) pH、ECについて希釈して測定した場合、その測定値
- f) その他人為的ミス等により精度に問題があると判断された場合

なお、b)の試料汚染について、虫などが試料に混入しても当該試料の R_1 及び R_2 が基準範囲内であれば、有効な試料として取り扱った。黄砂が混入した場合は、全て有効とした。

(ウ) 月の区分

1 週間捕集の場合、捕集期間の中間日がどの月に属するか、ということから対象月を決定した。このため月間値の計算の対象となる月の日数が実際の日数と異なる場合がある。年間値も同様に計算の対象となる年の日数が実際の日数と異なる場合がある。

② 非海塩性の硫酸イオン及びカルシウムイオン濃度の計算

非海塩性の硫酸イオン濃度 ($nss-[SO_4^{2-}]$) 及びカルシウムイオン濃度 ($nss-[Ca^{2+}]$) は、以下の方法で算出した。

$nss-[SO_4^{2-}]$ 、 $nss-[Ca^{2+}]$ の計算 (単位: $\mu\text{mol L}^{-1}$)

$$nss-[SO_4^{2-}] = [SO_4^{2-}] - 0.06028 \times [Na^+]$$

$$nss-[Ca^{2+}] = [Ca^{2+}] - 0.02161 \times [Na^+]$$

(海水中の濃度を Na^+ :468.3 mmol L⁻¹, SO_4^{2-} :28.23 mmol L⁻¹, Ca^{2+} :10.12 mmol L⁻¹ とする。
気象庁編：海洋観測指針，第 1 部，財団法人気象業務支援センター，pp 31 (1999))

③ 月間値・年間値（平均値、湿性沈着量）の計算

すべての測定項目が測定されていない試料でも測定されている項目については有効として取り扱った。このため、測定項目によって計算対象となる試料数が異なる場合がある。月間値・年間値の計算は以下の方法で算出した。

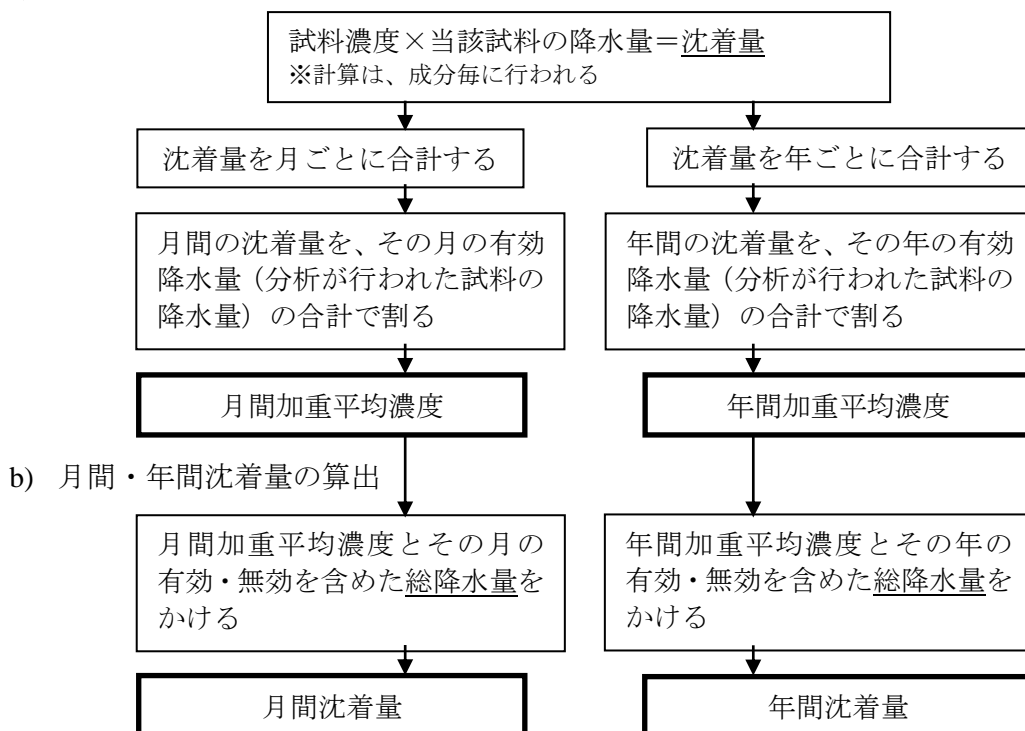
(ア) pH、電気伝導率、各イオン濃度の月平均値及び年平均値

pH は H^+ 濃度の降水量重みつき平均値の pH 換算値を、電気伝導率と各イオン濃度は降水量の重みつき平均値を、月間及び年間についてそれぞれ算出した。

(イ) 湿性沈着量

各イオンの湿性沈着量は、イオン濃度（pH から算出される H^+ 濃度を含む）が有効な試料から、月間及び年間の濃度平均値（降水量の重みつき）を算出し、それに月間または年間の降水量を乗じて算出した。即ち、分析値に欠測がある期間も濃度平均値の降雨があるという仮定に基づいて計算した。加重平均濃度及び月間・年間沈着量の計算の流れは次の通り。

a) 加重平均濃度の算出



④ データの評価基準

(ア) %PCL (Percent Precipitation Coverage Length)

降水量がいずれかの方法で測定された日数の割合（アメダスデータを除く）で、以下の式で求めた。

$$\%PCL = (\text{対象期間の日数} - \text{降水量欠測の日数}) / (\text{対象期間の日数}) \times 100$$

(イ) %TP (Percent Total Precipitation)

月間値、年間値について、測定項目毎に%TP を計算した。%TP は以下の式によって求めた。

$$\%TP = (\text{対象期間中における有効試料の降水量の合計}) / (\text{対象期間中の降水量の合計}) \times 100$$

(ウ) SO_4^{2-} 平均濃度、 Ca^{2+} 平均濃度における海塩粒子の寄与率

SO_4^{2-} 平均濃度、 Ca^{2+} 平均濃度の月間値、年間値における海塩粒子の寄与率を以下の式によって求めた。

・ $[\text{SO}_4^{2-}]$

$$\text{海塩粒子の寄与率}(\%) = [(\text{対象期間中における } \text{SO}_4^{2-}\text{平均濃度}) - (\text{対象期間中における nss-}\text{SO}_4^{2-}\text{平均濃度})] / (\text{対象期間中における } \text{SO}_4^{2-}\text{平均濃度}) \times 100$$

・ $[\text{Ca}^{2+}]$

$$\text{海塩粒子の寄与率}(\%) = [(\text{対象期間中における } \text{Ca}^{2+}\text{平均濃度}) - (\text{対象期間中における nss-}\text{Ca}^{2+}\text{平均濃度})] / (\text{対象期間中における } \text{Ca}^{2+}\text{平均濃度}) \times 100$$

(エ) 月間値・年間値の判定

(ア) から (ウ) の評価基準を用いて、測定項目毎に月間・年間値の有効性の判定を行った。判定基準を下表に示す。なお、測定値が 1 項目以上ある試料を判定の対象とし、降水量が 0.5 mm 未満の場合は、試料量から計算した値(相当雨量)を計算に用いた。

項 目	判 定 基 準
濃度・沈着量の月間・年間値	%TPが80%以上かつ%PCLが80%以上
nss- SO_4^{2-} 、nss- Ca^{2+} の月間・年間値	上記に加え、海塩粒子の寄与率が75%以下

(オ) その他

以下の評価を行った。

・ **%CE(Percent Collection Efficiency)**

捕集量から求めた相当雨量と雨量計の値との比で、捕集量と雨量計の値の両方が利用可能な試料について、以下の式で計算される。

$$\%CE = (\text{対象期間中の捕集量から計算した降水量の合計}) / (\text{対象期間中の雨量計測定値の合計}) \times 100$$

3.2 令和元年度国内酸性雨測定局乾性沈着モニタリングデータについて

(1) 調査地点及び大気濃度モニタリング状況

国設酸性雨測定局において、令和元年度(平成31(2019)年4月～令和元(2020)年3月)に測定された項目を以下にまとめる。なお、落石岬における自動測定機データは、国立研究開発法人国立環境研究所より提供されたものである。

表1 調査地点及びモニタリングの状況

		自動測定機					フィルターパック
		SO ₂	O ₃	NO, NO _x *, NO _x 注1)	PM ₁₀	PM _{2.5}	
E A N E T 局	利尻	○	○	○	○	○	○
	落石岬	○ 注2)	○ 注2)	○ 注2)	○ 注2)	○ 注2)	○
	佐渡関岬	○	○	○	○	○	○
	八方尾根	○	○	○	○	○	○
	伊自良湖	○	○	○	○	○	○
	隠岐	○	○	○	○	○	○
	禰原	○	○	○	○	○	○
	辺戸岬	○	○	○	○	○	○
	小笠原	○	○	○	○	○	○
	東京	—	—	—	—	—	○
	新潟巻	○	○	○	—	—	—
	対馬	—	○	—	○	○	—
他 の 国 設 局	札幌	○	○	○ 注3)	—	○	—
	籠岳	○	○	○	—	○	—
	赤城	—	○	—	—	—	—
	尼崎	○	○	○ 注3)	—	○	—
	筑後小郡	○	○	○	—	○	—
	五島	—	○	—	—	—	—
	えびの	○	○	—	—	—	—
	屋久島	○	○	—	—	—	—

注1) 遠隔地域及び田園地域ではNO及びNO₂以外の窒素化合物のアーティファクトの影響が無視できないため本資料中ではNO_x*と表記し、都市地域ではNO_xの主要成分はNO及びNO₂と考えられるため、NO_xと表記する。

注2) 落石岬局の自動測定機データは、運営管理を行っている国立環境研究所によりデータ確定を行っている。参考データとして、本データ集に含めた。

注3) 札幌局、尼崎局は都市地点であるため、NO₂データも集計した。

注4) 令和元年度より、新潟巻局と対馬局がEANET局となった。また、筑後小郡局のSO₂、NO、NO_x*、PM_{2.5}の集計も加えた。(竜飛岬局、蟠竜湖局、越前岬局、大分久住局はH30年度で廃止した。)

(2) データ検証作業の手順

① 集計方法

各自治体から報告されたデータは、アジア大気汚染研究センターによって、表2の集計項目別に集計した。自動測定機の月間平均値、月間中央値及び月間完全度については時間値データから算出し、月間最大値及び月間最小値については東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)データ報告様式に基づき、日平均値から求めた。フィルターパックの場合は、最高分解能データ(2週間)から求めた月毎の平均値、完全度、最大・最小値を集計した。また、単位は、EANETデータ報告様式に基づき、ガスはppb、粒子は $\mu\text{g m}^{-3}$ を用いた。

表 2 データ集計項目

a) 自動測定機の月間集計

集計項目	集計方法
Mean	時間値から算出した月間平均値
Median	時間値から算出した月間中央値
%	月の時間数に対する有効データ時間数の割合 (%)
%*	月の時間数に対する検出下限値以上の有効データ時間数の割合 (%)
Max, Min	日平均値の月間最大値, 日平均値の月間最小値 ^{注1)}

注1) 月間最大値、月間最小値を示す日平均値は、1日のうちで18時間以上有効データがある日を算出対象とする。

b) フィルターパックの月間集計

集計項目	集計方法
Mean	最高分解能データ (2週間) から求めた月間平均値
Max, Min	最高分解能データ (2週間) から求めた月間最大値及び月間最小値
%	月の日数に対する有効データ測定日数の割合 (%)

【検出下限値】

各測定項目において平均値、中央値、最大値、最小値が、表3の検出下限値未満の値となった場合には表中でその旨を明記した。検出下限値は各自動測定機の基本仕様及びフィルターパックの5つのブランク値に対する標準偏差の3倍を大気中濃度に換算した値を考慮して設定した。

表 3 各測定項目と検出下限値

測定項目	検出下限値
SO ₂	0.1 ppb
NO, NO ₂ , NO _x , (NO _x *)	0.1 ppb
O ₃	1 ppb
HNO ₃	0.1 ppb
HCl	0.1 ppb
NH ₃	0.1 ppb
PM ₁₀ , PM _{2.5}	1 µg m ⁻³
粒子成分	0.01 µg m ⁻³

② 自動測定機について

各測定局の自動測定機の情報を表4にまとめる。自動測定機の測定値については、平成22年度データより環境大気常時監視マニュアル第6版に準じてマイナス値をそのまま扱ってデータ集計を行った。

表4 各測定局における自動測定機の測定項目及び型式

測定局	メーカー	測定項目 (型式)
利尻 (北海道)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-370)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
落石岬 (北海道)	サーモ	SO ₂ (Model43c), NO, NO _x *(Model42i-TL)
	ダイレック	O ₃ (Model1150)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
佐渡関岬 (新潟)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-370)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
八方尾根 (長野)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-370)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
伊自良湖 (岐阜)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-360)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
隠岐 (島根)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-370)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
禰原 (高知)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-360)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
辺戸岬 (沖縄)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-360)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
小笠原 (東京)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-370)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
新潟巻 (新潟)	堀場	SO ₂ (APSA-365), NO, NO _x *(APNA-365), O ₃ (APOA-360)
対馬 (長崎)	東亜 DKK	O ₃ (GUX-313)
	紀本電子 (β-ray)	PM ₁₀ , PM _{2.5} (PM-712)
札幌 (北海道)	東亜 DKK	SO ₂ (GUX-312) ^{注1} , NO, NO ₂ , NO _x (GLN-354D)
	堀場	O ₃ (APOA-370)
	サーモ (β-ray)	PM _{2.5} (FH62 C14)
籠岳 (宮城)	東亜 DKK	SO ₂ (GFS-312B), NO, NO _x *(GLN-314D) ^{注1} , O ₃ (GUX-313B),
	サーモ (β-ray)	PM _{2.5} (SHARP5030)
赤城 (群馬)	東亜 DKK	O ₃ (APOA-370)
尼崎 (兵庫)	東亜 DKK	SO ₂ (GFS-327C) ^{注1} , O ₃ (GUX-353B)
	紀本電子	NO, NO ₂ , NO _x (NA-623) ^{注1}
	紀本電子 (β-ray)	PM _{2.5} (PM-712)
筑後小郡 (福岡)	紀本電子	SO ₂ (SA-731), NO, NO _x *(NA-721), PM _{2.5} (PM712)
	東亜 DKK	O ₃ (GUX-313)
五島 (長崎)	東亜 DKK	O ₃ (GUX-313)
えびの (宮崎)	東亜 DKK	SO ₂ (GFS-212), O ₃ (GUX-353)
屋久島 (鹿児島)	東亜 DKK	SO ₂ (GFS-352) ^{注1} , O ₃ (GUX-353)

注1) 札幌局、籠岳局、尼崎局、屋久島局の SO₂ 測定機及び札幌局、籠岳局、尼崎局の NO_x 測定器の最小測定濃度は 1 ppb である (他の測定局は 0.1 ppb)。

③ β線吸収法によるPM₁₀、PM_{2.5}測定値について

国設酸性雨測定所では、東京局と新潟巻局を除く全てのEANET局と札幌局、籠岳局、尼崎局、筑後小郡局、対馬局においてβ線吸収式自動測定機が導入されている。β線吸収法では、原理的に核種崩壊の確率誤差を伴うため、±10 μg m⁻³相当程度の計数誤差を生じる。また、湿度影響も指摘されており、PM₁₀、PM_{2.5}が低濃度時には、その測定値はマイナスの出力となる場合がある。

マイナス値の取り扱いについて、平成22年度データより環境大気常時監視マニュアル第6版に準じて自動測定機のマイナス値をそのまま扱ってデータ集計を行っている。なお、機器の仕様および空試験の結果を考慮して、-50 μg m⁻³以下の全てのデータと異常な時間変化を示しているマイナス値データを棄却した。

④ フィルターパックについて

フィルターパック法による大気濃度モニタリングは、平成25年12月に出版された「東アジア大気濃度モニタリングに関する技術マニュアル」に基づいて実施されている。サンプリングは2週間毎の予め申し合わせた期間に実施された。

なお、東京局、対馬局を除くEANET局では、自動測定機の測定値を各局におけるSO₂濃度として採用しており、フィルターパック法で測定されたSO₂濃度は公式な測定値となっていないが、参考資料として表1-2に示した。

フィルターパックによる測定では、4種のフィルターパック用ろ紙に対してブランク値の定量が併せて実施されており、大気試料の分析値からブランク値を差し引いて大気濃度の算出を行っている。なお、ブランクフィルターの分析枚数は、平成17年度以降は毎月3枚ずつとなっており、大気中濃度の定量に用いるブランク値には、中央値を採用した。

⑤ データ検証作業の手順

(ア) 提出データの確認

各自治体から提出されるデータに不備がないか確認し、必要なデータすべてを完備した。

(イ) データのグラフ化

データ検証に役立たせるため、全測定局の全測定成分について、自動測定機は1時間値、フィルターパックはサンプリング期間値ベース(2週間)の時系列グラフを作成した。

(ウ) 予備的検証

データ検証グループに提出する前に、アジア大気汚染研究センターで予備的な検証、自治体等担当者への問い合わせを行い、明らかに機器の異常、局所的な人為発生源等による異常値が確認できた場合は、その時点で欠測にした。

(エ) データの集計

「①集計方法」に基づき集計を行い、データ集を作成した。各測定項目において平均値、中央値、最大値、最小値が表3に示す検出下限値未満となった場合にはデータ集の表中でその旨を明記した。

(オ) データ検証グループによるデータの検証

データ集をデータ検証委員に提出し、科学的な観点から疑問が生じるデータの抽出を行った。

(カ) 検証結果から抽出された疑問データの調査

(オ)で抽出されたデータに関し、その原因究明の調査を実施した。調査方法(手段)は以下のとおりである。

- ▶ 測定状況の確認（報告書の確認、自治体担当者への照会）
- ▶ 機器に関する確認（機器のステータスデータの確認、機器メーカーへの照会）
- ▶ 発生源の調査（風向と濃度の関係の検討又は後方流跡線解析）
- ▶ 気象要素や他成分濃度との関連を調査
- ▶ フィルターパックの場合、粒子成分のイオンバランスの確認、SO₂自動計測器との比較、ブランク値の確認

3.3 令和元年度国内酸性雨（土壌・植生）モニタリングデータについて

(1) はじめに

平成 15 年度から、酸性雨長期モニタリング計画に従った新しいモニタリング体制の下、土壌・植生モニタリングは、表 5 に示す「主に樹木への影響に着目した地点」、「主に土壌への影響に着目した地点」、「陸水への影響に着目した地点」及び「EANET 登録地点」で実施している。主に樹木への影響に着目した地点については、国立公園等の自然保護地域内の天然林で実施されている。樹木衰退度調査はすべての地点で毎年行われているが、土壌モニタリング及び森林総合調査（毎木調査）は、5 年ローリング方式で実施している（表 6 参照）。

調査結果は「土壌・植生モニタリング手引書」の報告様式に従って記載され、環境省に報告書と電子媒体データが提出されている。

令和元年度は、土壌モニタリングおよび森林総合調査は岩手県、奈良県及び鹿児島県の 3 自治体で行われた。樹木衰退度調査は 12 自治体で実施された。

表5 土壌・植生モニタリング地点一覧

地点番号	地域特性等	区分	対象とする樹種、土壌種、または湖沼	備考		
				林分の数	土壌プロット数	植生プロット数
1	知床国立公園（北海道）	樹木	トドマツ	1	2	1
2	支笏洞爺国立公園（北海道）	樹木	ダケカンバ	1	2	1
3	十和田八幡平国立公園（岩手県）	樹木	オオシラビソ	1	2	1
4	磐梯朝日国立公園（新潟県）	樹木	ブナ	1	2	1
5	日光国立公園（栃木県）	樹木	ブナ	1	2	1
6	中部山岳国立公園（富山県）	樹木	ブナ	1	2	1
	白山国立公園（石川県）	樹木	ブナ	1	2	1
7	吉野熊野国立公園（奈良県）	樹木	ブナ	1	2	1
8	大山隠岐国立公園（鳥取県）	樹木	ブナ	1	2	1
9	石鎚国定公園（高知県）	樹木	ブナ	1	2	1
	阿蘇くじゅう国立公園（大分県）	樹木	ブナ	1	2	1
10	霧島屋久国立公園・屋久島	樹木	スギ	1	2	1
11	（鹿児島県）	樹木	照葉樹林	1	2	1
12	石動山・宝立山（石川県）	土壌	赤色土/ 褐色森林土	2	2×2	2×1
13	法道寺・天野山（大阪府）	土壌	黄色土/黄色系褐色森林土	2	2×2	2×1
	霜降岳・十種が峰（山口県）	土壌	黄色土/黒色土	2	2×2	2×1
14	香椎宮・古処山（福岡県）	土壌	赤色系褐色森林土/褐色森林土	2	2×2	2×1
15	伊自良湖（岐阜県）	EANET（陸水）	伊自良湖集水域 褐色森林土/	2	2×2	2×1
	蟠竜湖（島根県）	EANET（陸水）	蟠竜湖集水域 赤色土/黄色系褐色森林土	2	2×2	2×1

灰色は、平成30年度をもって調査が終了した地点を示す。

表6 土壌モニタリング及び森林モニタリング（森林総合調査）実施時期

土壌調査の実施年度 ^(*)	担当自治体（地点番号 ^(**) ）
R1 (2019)	鹿児島県 (10、11)、岩手県 (3)、奈良県 (7)、高知県 (9)
R2 (2020)	北海道 (1)、石川県 (12)、富山県 (6)
R3 (2021)	岐阜県 (15)
R4 (2022)	新潟県 (4)、大阪府 (13)、福岡県 (14)
R5 (2023)	栃木県 (5)、鳥取県 (8)、北海道 (2)

*、樹木衰退度調査は、平成15年度から全地点で実施する。森林総合調査は、土壌調査と同じ年に実施する。

**、地点番号の下線は、土壌2種類（土壌4プロット、森林2プロット）が設定される地域を示す。それ以外は、土壌1種類（土壌2プロット、森林1プロット）が設定される。

(2) 土壌・森林基礎調査の概要

以下の調査を5年に1回の頻度で実施する。

① 土壌モニタリング

(ア) 調査方法

- 土壌種が異なる（感受性が異なる）2カ所の林分（最低0.2 ha、1 ha以上が望ましい）を選定。
- 大気（湿性・乾性沈着）モニタリング地点から50 km以内が望ましい。
- 1林分につき、5×5～10 m×10 mの調査定点（プロット）を2カ所設定する。
- プロットを設定する時に、土壌断面調査を実施する（初年度のみ）。
- 各プロットにおいて5つのサブプロットを設定する。
- 各サブプロットにおいて、リター層を取り除いた後、表層（0～10 cm）及び次層（10～20 cm）の土壌を1～2 kg採取し、分析を実施する。
- 分析は精度管理のため、2回実施する。

上記手順に従った場合、

2調査林分（土壌2種）×2プロット×5サブプロット×2層×2回分析=80データが得られる。

なお、国立公園等の樹木への影響に着目した地点においては、調査林分は1つ（土壌1種）となる。

(イ) 調査項目

必須項目：含水率、pH(H₂O)、pH(KCl)、交換性塩基（Ca、Mg、Na、K）、交換酸度、有効交換塩基容量（ECEC：塩基と酸度より算出）、交換性Al及びH

（石灰岩性の土壌の場合は、炭酸塩含有率を分析すること）

選択項目：全炭素含有量、全窒素含有量、有効態リン酸、硫酸イオン、土壌密度、土壌硬度

② 森林モニタリング（森林総合調査）

(ア) 調査方法

- 土壌モニタリングと同じ林分で実施する。
- 毎木調査にあたっては、大きさの異なる3つの同心円プロットを設定する。
- 樹木衰退度調査にあたっては、林分の中心から東西南北4方位に約12 m離れた地点において、5本ずつ優勢木を選定し、計20本について観察を実施する。

(イ) 調査項目

毎木調査（樹種、胸高直径、樹高）、下層植生調査、樹木衰退度調査、林冠写真、衰退原因推定

(3) アジア大気汚染研究センターによるデータ整理と検証作業

環境省経由で提出された報告書に基づき、データ整理及び検証作業をアジア大気汚染研究センターにおいて実施した。作業内容及び実施上の留意点は以下の通りである。

① 調査方法及びデータ数の確認

調査方法、検体数及び結果として得られるデータ数が「技術マニュアル」及び手引書に合致しているか確認した。

② 報告様式の整理

表形式等を手引書の報告様式に準じて整理、統一した。土壌分析値については有効数字の桁数を調整した。また、植物名の和名・学名を環境省植物目録に合わせて統

一した。

③ 土壌分析の再現精度と妥当性の確認

2回の繰り返し分析が異なる分析日に実施されていることを確認し、繰り返し分析誤差が25%以下であるかチェックした。25%を超える試料について、入力ミスや分析のミスがなかったかどうかを担当者に問い合わせた。明らかな操作ミス等が判明した場合、欄外に注記した。また、風乾土の含水率がおおむね10%以下（黒ボク土は15%以下）であることを確認した。平成25年度より、含水率が10%以下であること、水分含量が安定していることを確認した後に分析を開始するよう注意喚起している。

④ 採取試料の妥当性の確認

各プロット（10m×10m）に設定した5箇所のサブプロット間の分析値の変動計数が75%を超える場合、その原因と考えられる極端な値を示す土壌試料に関して採取時のトラブル、コンタミ等がなかったかを担当者に確認した。明らかな異常が確認された場合は、理由を欄外に注記した。

⑤ 経年変化の妥当性の確認

分析項目の経年変化をグラフ化し、極端な変化や異常がないかを確認した。

⑥ 国内データ検証グループによるデータ検証

①～⑤の確認作業を経た集計データについて、国内データ検証グループに依頼しデータ検証作業を行った。さらに必要に応じて自治体担当者への問い合わせ・確認等を行った。

3.4 令和元年度国内酸性雨（陸水）モニタリングデータについて

(1) はじめに

平成15年度より、酸性雨長期モニタリング計画に従って、陸水の酸性雨モニタリングが実施された。実際の業務は各自治体の分析機関によって担われており、調査項目・手法ならびに分析方法が「陸水モニタリング手引き書」に基づいたものとなっている。

本報告は、令和元年度（平成31年4月～令和2年3月）の国内モニタリング湖沼のモニタリングデータを取りまとめた結果である。

(2) データ検証作業の手順について

① アジア大気汚染研究センターのデータ集計作業

(ア) モニタリングの状況

令和元年度の陸水モニタリングは、下記6湖沼（6自治体）で実施された。また、令和元年度は双子池において底質調査が実施された（*印はEANETサイト）。

今神御池（山形県）、刈込湖（栃木県）、夜叉ヶ池（福井県）、双子池*（雄池・雌池）（長野県）、伊自良湖*（岐阜県）、沢の池（京都市）、

表7 調査・分析状況

湖沼名	調査地点数	調査回数	サンプリング回数	繰り返し分析回数
今神御池	2	4	2	3
刈込湖	2	4	2	3
夜叉ヶ池	2	4	2	3
双子池*1 (雄池)	2	3	2(1)*2	3
双子池*1 (雌池)	2	3	2(1)*2	3
伊自良湖*1	4	4*3	2	3
沢の池	2	4	2	3

*1 : 国内 EANET サイト。アルカリ度の分析は pH4.8 法に加え Gran's plot 法も実施。

*2 : 括弧内は底質調査状況を示す。湖心底質の表層・中層・底層を分析した。

*3 : 川の流れがなかったため、秋季及び冬季の孝洞川は欠測。

(イ) 分析結果の取り扱い

- 現地の各採取地点において2試料を採取し試験室に搬入した後、原則として、1つの試料毎に3回の繰り返し分析を行っている。ただし DO は実施自治体により異なる測定方法（滴定法あるいは隔膜電極法）を採用しており、測定試料数及び繰り返し測定数も異なっている。
- データ集計では繰り返し分析を算術平均し、さらに2試料間の平均値を求めてその採取日のデータとした。また、各採取地点の年平均値を算出した。ただし pH の平均値は、水素イオン濃度に換算、算術平均した後、再び pH 値として表した。
- 測定値が定量下限値未満の場合は0とみなし、平均値および R_1 (イオンバランス)、 R_2 (EC の計算値の測定値の比較) を計算した。

② データ検証作業

各自治体から提出された調査報告書ならびに集計作業を経たデータをもとに、「陸水モニタリング手引き書」に従い、測定の検出下限値・定量下限値、 R_1 (イオンバランス)・ R_2 (EC の計算値と測定値の比較)、変動係数、ならびに平均値比率について、管理目標値を満たすか確認を行った。これらを踏まえ、集計データについて、過年度からの経年変化を加えたものも併せて国内データ検証グループに依頼し、データ検証作業を行った。さらに必要に応じて自治体担当者への問い合わせ・確認等も行った。

3.5 令和元年度集水域モニタリングデータについて

(1) 令和元年度モニタリングの状況

伊自良湖集水域（岐阜県山県市）では 1990 年代半ばに酸性化や窒素飽和が進んでいることが報告されたが、近年回復の兆候が見られている。また、懸案であった河川に流出する硫黄の多くは地質由来であることが明らかになっている。その一方で大気沈着由来の硫黄は生態系内に多く蓄積されている可能性が示唆されており、今後順調に回復が進むのかどうかさらに注視する必要があることが、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書（平成 25～29 年度）で指摘されている。上記報告書の完成と同時に平成 31 年 3 月に改訂された「越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画（以下、長期モニタリング計画）」では、伊自良湖集水域における集水域モニタリングを、令和元年（2019 年）度以降も定期観測項目として継続していくことが明記された。集水域モニタリングの進展により、大気由来の物質の挙動・動態を含め、生態系への酸性物質の負荷を検討・評価することが期待されている。確定された集水域モニタリングデータは、東アジア酸

性雨モニタリングネットワーク（EANET）の集水域モニタリング・ガイドラインに基づき、EANET に提出する。我が国からは、これまで 2007 年以降のデータ（2007-2018 年の 11 水年分）を EANET に提出した。

(2) 集水域モニタリングの観測項目

表 8 に令和元年度に改訂された観測項目を示した。流入量（湿性＋乾性による総沈着量）及び流出量の物質収支から、当該集水域における酸性物質の負荷量を検討、評価するとしている。湿性・乾性沈着は伊自良湖酸性雨測定所における観測データを基に別途評価中であり、集水域モニタリングにおけるデータ確定項目には含まれない。伊自良湖集水域では湿性沈着量の算出に大きく影響する降水量分布を把握するために、降水量を 3 地点で観測しており、これらはデータ確定の対象である。

平成 26 年 4 月より、河川水質分析は月 2 回に変更された。3 月から翌年 2 月までのデータが検証・確定対象となるが、データ集計・解析は前年度確定された分も含め、水年単位で行っている。水年の区切りは、流入・流出の季節変化を基に、11 月初旬としている。

表 8 伊自良湖集水域モニタリングの観測項目及び方法

調査項目		頻度・方法
流入量（総沈着量）の推定	湿性沈着量	近隣酸性雨測定所における湿性沈着モニタリングデータを基に湿性沈着量を推計する。集水域内の降水量分布が把握される場合は、それも考慮して推計する。
	乾性沈着量	近隣酸性雨測定所における大気汚染物質モニタリングデータを基に、インファレンシャル法を用いて乾性沈着量を推計する。
	総沈着量	総沈着量は上記の湿性沈着量及び乾性沈着量の和とする。集水域内における林内雨・樹幹流法による観測データが活用可能な場合はそれも参照する。
流出量の推定	流量	量水堰を用いた観測、または水位を連続監視し、観測から水位・流量曲線に基づき流量を推計する。
	河川水質	月 2 回、河川水を採取し、次の測定を行う。測定項目：水温、pH、電気伝導率（EC）、アルカリ度（pH4.8、グランプロット法）、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 NH_4^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、TOC（または DOC）、溶存態全 Al、 SiO_2
	流出量	上記の流量と河川水質を基に流出量を推計する。

（「越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画（平成 31 年 3 月）」より）



図1 令和元年度伊自良湖集水域モニタリング装置配置図

注：太線内は、物質収支解析を行った釜ヶ谷川の集水域を示す。

モニタリング実施機関は以下のとおり。

現地観測・試料採取：一般財団法人岐阜県公衆衛生検査センター

分析：一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター生態影響研究部

データ集計：同 情報管理部（国内センター）

(3) データ検証作業

① 水収支（降水量及び流出量）

(ア) 降水量

- 伊自良湖酸性雨測定所を含め 3 地点で測定されている標準雨量計による降水量データを集計、月・年降水量等を算出した。
- 雨量計のデータロガー等の不調による欠測期間については、地点間の降水量の関係を基に、補完データを推計し、月間値、年間値の算出に用いている。2018-2019 水年においては、欠測期間はなかった。

(イ) 河川流出水量

- 水位及び流量は、RW1 と RW2 で定期的に観測している。
- 水位と流量の定期観測結果を基に水位・流量曲線を作成し、RW1 付近に設置してある水位ロガーによる連続水位データを基に、RW1 における 10 分毎の流量を推計した。
- これまでは 2010 年までの実測に基づき作成した水位・流量曲線の推定式（以下、F10 とする）を用いていたが、近年の流出量推定はやや過大評価気味になっているように見受けられる。特に河床の形状変化の影響を大きく受ける低水位時のデータを補正するため、2015 年 1 月から 2019 年 12 月までの過去 5 年間の実測に基づき作成した新たな推定式（以下、F19_5e）を作成し、水位 0.35 m までの低水位時に適用することとした。水位 0.35 m を超える場合は F10 を適用し、

水位によって2つの推定式を使い分けることとする。これまでのF10だけで推定した流出量と3-5年程度の並行評価を行うこととする。

- 渓流水のサンプリング（月2回、平成26年3月までは2週間毎）のタイミングに合わせ、前回のサンプリングと今回のサンプリングの間に流れた流量（期間流量）を算出した。

(ウ) 水年と水収支

- 水年は11月から翌年10月までとした。
- 水収支の確認のため、RW1を基点とした集水域面積（298 ha）で流出推量を規格化し、降水量と同じ単位（mm）に換算した。
- 物質収支解析に用いる物質流入量は伊自良湖測定所の沈着量を基本としているが、谷間に位置する伊自良湖測定所の降水量が比較的低いため、集水域全体への降水量としては3地点の平均値を用いることとしている（集水域内への湿性沈着による流入量を算出する際には、伊自良湖測定所の降水濃度と集水域内3地点の平均降水量から算出した）。

② 渓流水濃度及び流出量

(ア) 渓流水濃度

- 渓流水は分析機関に到着後、できるだけ早く分析を行った。分析結果は、陸水モニタリングにおける手引書及びEANETのQA/QCプログラムに従い、R₁、R₂の確認を行い、問題があれば再分析を行った。
- 報告された分析値の単位はモルチャージ単位（mol_c L⁻¹）に換算した。
- RW1、RW2及びRW3の3地点の濃度を平成17年度の調査開始時から連続してプロットし、3地点間の変化傾向を確認した。

(イ) 流出量

- 前回の渓流水濃度と今回の渓流水濃度の平均濃度でこの間流れたと仮定し、期間流量を乗じて、この期間の流出量を算出した。
- 上記期間流出量を積算し、水年当たりの流出量を算出した（kmol_c ha⁻¹ y⁻¹）。

③ 国内データ検証グループによるデータ検証

上記データ集計に用いた主要なエクセルファイルは、データ検証委員に開示し、データの精査を行った。